

DOCKET NO.: 271657US0PCT

**IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE**

IN RE APPLICATION OF: Hisaya NISHIDE, et al.

SERIAL NO.: NEW U.S. PCT APPLICATION

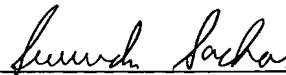
FILED: HERewith

INTERNATIONAL APPLICATION NO.: PCT/JP03/13785

INTERNATIONAL FILING DATE: October 28, 2003

FOR: 3-BENZOYL-2,4,5-SUBSTITUTED PYRIDINE DERIVATIVES OR SALTS  
THEREOF, AND FUNGICIDES CONTAINING THEM**REQUEST FOR PRIORITY UNDER 35 U.S.C. 119**  
**AND THE INTERNATIONAL CONVENTION**Commissioner for Patents  
Alexandria, Virginia 22313

Sir:

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that  
the applicant claims as priority:**COUNTRY**  
Japan**APPLICATION NO**  
2002-317759**DAY/MONTH/YEAR**  
31 October 2002Certified copies of the corresponding Convention application(s) were submitted to the  
International Bureau in PCT Application No. PCT/JP03/13785. Receipt of the certified  
copy(s) by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been  
acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.Respectfully submitted,  
OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,  
MAIER & NEUSTADT, P.C.Norman F. Oblon  
Attorney of Record  
Registration No. 24,618  
Surinder Sachar  
Registration No. 34,423Customer Number  
**22850**(703) 413-3000  
Fax No. (703) 413-2220  
(OSMMN 08/03)**BEST AVAILABLE COPY**

## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION CONCERNING  
SUBMISSION OR TRANSMITTAL  
OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

SENMYO, Kenji  
Torimoto Kogyo Bldg.  
38, Kanda-Higashimatsushitacho  
Chiyoda-ku, Tokyo 101-0042  
Japan

RECEIVED

JAN 30, 2004

YAMAMOTO, OGAWA  
& SENMYO

Date of mailing (day/month/year) 21 January 2004 (21.01.2004)	
Applicant's or agent's file reference IH-146	IMPORTANT NOTIFICATION
International application No. PCT/JP2003/013785	International filing date (day/month/year) 28 October 2003 (28.10.2003)
International publication date (day/month/year) Not yet published	Priority date (day/month/year) 31 October 2002 (31.10.2002)
Applicant ISHIHARA SANGYO KAISHA, LTD. et al	

- By means of this Form, which replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents, the applicant is hereby notified of the date of receipt by the International Bureau of the priority document(s) relating to all earlier application(s) whose priority is claimed. Unless otherwise indicated by the letters "NR", in the right-hand column or by an asterisk appearing next to a date of receipt, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
- (If applicable) The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which, on the date of mailing of this Form, had not yet been received by the International Bureau under Rule 17.1(a) or (b). Where, under Rule 17.1(a), the priority document must be submitted by the applicant to the receiving Office or the International Bureau, but the applicant fails to submit the priority document within the applicable time limit under that Rule, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
- (If applicable) An asterisk(\*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b) (the priority document was received after the time limit prescribed in Rule 17.1(a) or the request to prepare and transmit the priority document was submitted to the receiving Office after the applicable time limit under Rule 17.1(b)). Even though the priority document was not furnished in compliance with Rule 17.1(a) or (b), the International Bureau will nevertheless transmit a copy of the document to the designated Offices, for their consideration. In case such a copy is not accepted by the designated Office as priority document, Rule 17.1(c) provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

<u>Priority date</u>	<u>Priority application No.</u>	<u>Country or regional Office or PCT receiving Office</u>	<u>Date of receipt of priority document</u>
31 Octo 2002 (31.10.2002)	2002-317759	JP	15 Janu 2004 (15.01.2004)

The International Bureau of WIPO  
34, chemin des Colombettes  
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No. (41-22) 338.70.10

Authorized officer



David GEVAUX (Fax 338 7010)

Telephone No. (41-22) 338 8778

PCT/PTO 29 APR 2005

PCT/JP03/13785

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

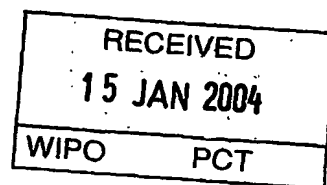
19.11.03

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application: 2002年10月31日

出 願 番 号  
Application Number: 特願2002-317759  
[ST. 10/C]: [JP2002-317759]



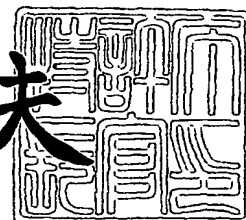
出 願 人  
Applicant(s): 石原産業株式会社

PRIORITY DOCUMENT  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH  
RULE 17.1(a) OR (b)

2003年12月25日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今井康夫



BEST AVAILABLE COPY

【書類名】 特許願

【整理番号】 P2002050

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 C07D213/53  
A01N 43/40

【発明者】

【住所又は居所】 滋賀県草津市西渋川二丁目 3 番 1 号 石原産業株式会社  
中央研究所内

【氏名】 西出 久哉

【発明者】

【住所又は居所】 滋賀県草津市西渋川二丁目 3 番 1 号 石原産業株式会社  
中央研究所内

【氏名】 小川 宗和

【発明者】

【住所又は居所】 滋賀県草津市西渋川二丁目 3 番 1 号 石原産業株式会社  
中央研究所内

【氏名】 谷村 豊史

【発明者】

【住所又は居所】 滋賀県草津市西渋川二丁目 3 番 1 号 石原産業株式会社  
中央研究所内

【氏名】 樋口 浩司

【発明者】

【住所又は居所】 滋賀県草津市西渋川二丁目 3 番 1 号 石原産業株式会社  
中央研究所内

【氏名】 小南 秀真

【発明者】

【住所又は居所】 滋賀県草津市西渋川二丁目 3 番 1 号 石原産業株式会社  
中央研究所内

【氏名】 岡本 智裕

**【発明者】**

**【住所又は居所】** 滋賀県草津市西渋川二丁目 3 番 1 号 石原産業株式会社  
中央研究所内

**【氏名】** 西村 昭廣

**【特許出願人】**

**【識別番号】** 000000354

**【住所又は居所】** 大阪府大阪市西区江戸堀一丁目 3 番 1 5 号

**【氏名又は名称】** 石原産業株式会社

**【代表者】** 溝井 正彦

**【手数料の表示】**

**【予納台帳番号】** 056823

**【納付金額】** 21,000円

**【提出物件の目録】**

**【物件名】** 明細書 1

**【物件名】** 要約書 1

**【プルーフの要否】** 要

## 【書類名】

明細書

【発明の名称】 3-ベンゾイル-2,4,5-置換ピリジン誘導体またはその塩及びそれらを含む殺菌剤

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-4-プロモ-5-クロロ-2-メトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-クロロ-4-エチル-2-メトキシピリジン、3-(4,5-ジメトキシ-2-メチルベンゾイル)-4,5-ジクロロ-2-メトキシピリジン、3-(5-エトキシ-4-メトキシ-2-メチルベンゾイル)-4,5-ジクロロ-2-メトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-4-プロモ-5-クロロ-2-エトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-クロロ-2-エトキシ-4-メチルピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-プロモ-4-クロロ-2-エトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-4-クロロ-5-ヨード-2-メトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-ヨード-2,4-ジメトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-クロロ-2-メトキシ-4-メチルチオピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-クロロ-2,4-ジメトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-4,5-ジプロモ-2-メトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-4-プロモ-2-メトキシ-5-メチルピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-プロモ-4-トリフルオロメチル-2-メトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-4,5-ジクロロ-2-メトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-2,4-ジクロロ-5-メチルピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-2,4-ジクロロ-5-ヨードピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-2-フルオロ-4-ヨード-5-メチルピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-2-フルオロ-4,5-ジメチルピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-2-メトキシ-4,5-ジメチルピリジン、3-(2-エトキシ-3,4-ジメトキシ-6-メチルベンゾイル)-2-エトキシ-4,5-ジメチルピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-4,5-ジメチル-2-メチルチオピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-プロモ-

4-クロロ-2-メトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-4-クロロ-2-メトキシ-5-メチルピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-2-クロロ-5-トリフルオロメチル-4-メチルピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-トリフルオロメチル-2-メトキシ-4-メチルピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-2,4-ジクロロ-5-トリフルオロメチルピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-4-クロロ-5-トリフルオロメチル-2-メトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-クロロ-4-エチニル-2-メトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-クロロ-4-フルオロメチル-2-メトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-ブromo-4-フルオロメチル-2-メトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-4-フルオロメチル-2-メトキシ-5-メチルピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-クロロ-4-ジフルオロメチル-2-メトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-エチル-4-トリフルオロメチル-2-メトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-クロロ-2-メトキシ-4-メチルピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-ブromo-2-メトキシ-4-メチルピリジン及び3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-4-トリフルオロメチル-2-メトキシ-5-メチルピリジンから成る群から選択される少なくとも一つの3-ベンゾイル-2,4,5-置換ピリジン誘導体またはその塩を有効成分として含有する、耐雨性を有する殺菌剤。

【請求項2】 3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-4-ブromo-5-クロロ-2-メトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-クロロ-4-エチル-2-メトキシピリジン、3-(4,5-ジメトキシ-2-メチルベンゾイル)-4,5-ジクロロ-2-メトキシピリジン、3-(5-エトキシ-4-メトキシ-2-メチルベンゾイル)-4,5-ジクロロ-2-メトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-4-ブromo-5-クロロ-2-エトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-クロロ-2-エトキシ-4-メチルピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-ブromo-4-クロロ-2-エトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-4-クロロ-5-ヨード-2-メトキシピリジン

、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-ヨード-2,4-ジメトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-クロロ-2-メトキシ-4-メチルチオピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-クロロ-2,4-ジメトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-4,5-ジブromo-2-メトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-4-ブromo-2-メトキシ-5-メチルピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-ブromo-4-トリフルオロメチル-2-メトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-4,5-ジクロロ-2-メトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-2,4-ジクロロ-5-メチルピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-2,4-ジクロロ-5-ヨードピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-2-フルオロ-4-ヨード-5-メチルピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-2-フルオロ-4,5-ジメチルピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-2-メトキシ-4,5-ジメチルピリジン、3-(2-エトキシ-3,4-ジメトキシ-6-メチルベンゾイル)-2-エトキシ-4,5-ジメチルピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-4,5-ジメチル-2-メチルチオピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-ブromo-4-クロロ-2-メトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-4-クロロ-2-メトキシ-5-メチルピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-2-クロロ-5-トリフルオロメチル-4-メチルピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-トリフルオロメチル-2-メトキシ-4-メチルピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-2,4-ジクロロ-5-トリフルオロメチルピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-4-クロロ-5-トリフルオロメチル-2-メトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-クロロ-4-エチニル-2-メトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-クロロ-4-フルオロメチル-2-メトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-ブromo-4-フルオロメチル-2-メトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-4-フルオロメチル-2-メトキシ-5-メチルピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-クロロ-4-ジフルオロメチル-2-メトキシピリジン及び3-(2,3,4-トリメトキシ-6-

メチルベンゾイル)-5-エチル-4-トリフルオロメチル-2-メトキシピリジンから成る群から選択される少なくとも一つの3-ベンゾイル-2,4,5-置換ピリジン誘導体またはその塩。

【請求項3】 (2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (4-ブromo-5-クロロ-2-メトキシ-3-ピリジル) メタノール、 (2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (5-クロロ-4-エチル-2-メトキシ-3-ピリジル) メタノール、 (4,5-ジメトキシ-2-メチルフェニル) (4,5-ジクロロ-2-メトキシ-3-ピリジル) メタノール、 (5-エトキシ-4-メトキシ-2-メチルフェニル) (4,5-ジクロロ-2-メトキシ-3-ピリジル) メタノール、 (2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (4-ブromo-5-クロロ-2-エトキシ-3-ピリジル) メタノール、 (2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (5-クロロ-2-エトキシ-4-メチル-3-ピリジル) メタノール、 (2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (5-ブromo-4-クロロ-2-エトキシ-3-ピリジル) メタノール、 (2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (4-クロロ-5-ヨード-2-メトキシ-3-ピリジル) メタノール、 (2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (5-ヨード-2,4-ジメトキシ-3-ピリジル) メタノール、 (2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (5-クロロ-2-メトキシ-4-メチルチオ-3-ピリジル) メタノール、 (2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (5-クロロ-2,4-ジメトキシ-3-ピリジル) メタノール、 (2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (4,5-ジブromo-2-メトキシ-3-ピリジル) メタノール、 (2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (4-ブromo-2-メトキシ-5-メチル-3-ピリジル) メタノール、 (2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (5-ブromo-4-トリフルオロメチル-2-メトキシ-3-ピリジル) メタノール、 (2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (4,5-ジクロロ-2-メトキシ-3-ピリジル) メタノール、 (2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (2,4-ジクロロ-5-メチル-3-ピリジル) メタノール、 (2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (2,4-ジクロロ-5-ヨード-3-ピリジル) メタノール、 (2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (2-フルオロ-4-ヨード-5-メチル-3-ピリジル) メタノール、 (2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (2-フルオロ-4,5-ジメチル-3-ピリジル) メタノール、 (2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (2-メトキシ-4,5-ジメチル-3-ピリジル) メタノール、 (2-エトキシ-3,4-ジメトキシ-6-メチルフェニル) (2-エトキシ-4,5-ジメチル-3-ピリジル) メタノール

ール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル)(4,5-ジメチル-2-メチルチオ-3-ピリジル)メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル)(5-プロモ-4-クロロ-2-メトキシ-3-ピリジル)メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル)(4-クロロ-2-メトキシ-5-メチル-3-ピリジル)メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル)(2-クロロ-5-トリフルオロメチル-4-メチル-3-ピリジル)メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル)(5-トリフルオロメチル-2-メトキシ-4-メチル-3-ピリジル)メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル)(2,4-ジクロロ-5-トリフルオロメチル-3-ピリジル)メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル)(4-クロロ-5-トリフルオロメチル-2-メトキシ-3-ピリジル)メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル)(5-クロロ-4-エチニル-2-メトキシ-3-ピリジル)メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル)(5-クロロ-4-フルオロメチル-2-メトキシ-3-ピリジル)メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル)(5-プロモ-4-フルオロメチル-2-メトキシ-3-ピリジル)メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル)(4-フルオロメチル-2-メトキシ-5-メチル-3-ピリジル)メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル)(5-クロロ-4-ジフルオロメチル-2-メトキシ-3-ピリジル)メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル)(5-エチル-4-トリフルオロメチル-2-メトキシ-3-ピリジル)メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル)(5-クロロ-2-メトキシ-4-メチル-3-ピリジル)メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル)(5-プロモ-2-メトキシ-4-メチル-3-ピリジル)メタノール及び(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル)(4-トリフルオロメチル-2-メトキシ-5-メチル-3-ピリジル)メタノールから成る群から選択される少なくとも一つのフェニルピリジルメタノール誘導体またはその塩。

#### 【発明の詳細な説明】

##### 【0001】

#### 【産業上の利用分野】

本発明は、特定の3-ベンゾイル-2,4,5-置換ピリジン誘導体またはそれらの塩、それらを含む殺菌剤及びそれらを製造するための中間体に関する。

##### 【0002】

**【従来の技術】**

WO02/2527には、殺菌剤として有用なベンゾイルピリジン誘導体が開示されている。しかしながら、そこには本発明化合物の具体的な記載はない。

**【0003】****【発明が解決しようとする課題】**

WO02/2527に開示されるベンゾイルピリジン誘導体は、種々の病害、特にイネ、ムギ類、野菜類、果実類および花卉類のうどんこ病、いもち病、さび病、べと病、疫病等に対して優れた予防効果および治療効果を発揮するが、さらなる改善の余地が残されている。

**【0004】****【課題を解決するための手段】**

本発明者らは、ベンゾイルピリジン誘導体に関し広範な研究を行った結果、特定の3-ベンゾイル-2,4,5-置換ピリジン誘導体が、薬剤散布後に作物が降雨を被った場合において優れた効果を発揮できる、いわゆる耐雨性を有する化合物群であることを見出すに至った。本発明の化合物群は、優れた耐雨性を有することから、薬剤散布後の降雨を考慮して薬剤の使用回数或いは使用量等を増やす必要がなく、より安いコスト、より少ない手間で作物を病害から守ることができる。

**【0005】**

すなわち、本発明は、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-4-プロモ-5-クロロ-2-メトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-クロロ-4-エチル-2-メトキシピリジン、3-(4,5-ジメトキシ-2-メチルベンゾイル)-4,5-ジクロロ-2-メトキシピリジン、3-(5-エトキシ-4-メトキシ-2-メチルベンゾイル)-4,5-ジクロロ-2-メトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-4-プロモ-5-クロロ-2-エトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-クロロ-2-エトキシ-4-メチルピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-プロモ-4-クロロ-2-エトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-4-クロロ-5-ヨード-2-メトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-ヨード-2,4-ジメトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-クロロ-2-メトキシ-

4-メチルチオピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-クロロ  
-2,4-ジメトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-4,5-  
ジブromo-2-メトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-4  
-ブromo-2-メトキシ-5-メチルピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベン  
ゾイル)-5-ブromo-4-トリフルオロメチル-2-メトキシピリジン、3-(2,3,4-トリ  
メトキシ-6-メチルベンゾイル)-4,5-ジクロロ-2-メトキシピリジン、3-(2,3,4-  
トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-2,4-ジクロロ-5-メチルピリジン、3-(2,3,4-  
トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-2,4-ジクロロ-5-ヨードピリジン、3-(2,3,  
4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-2-フルオロ-4-ヨード-5-メチルピリジン  
、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-2-フルオロ-4,5-ジメチルピリ  
ジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-2-メトキシ-4,5-ジメチル  
ピリジン、3-(2-エトキシ-3,4-ジメトキシ-6-メチルベンゾイル)-2-エトキシ-4,  
5-ジメチルピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-4,5-ジメチ  
ル-2-メチルチオピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-ブ  
romo-4-クロロ-2-メトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイ  
ル)-4-クロロ-2-メトキシ-5-メチルピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチル  
ベンゾイル)-2-クロロ-5-トリフルオロメチル-4-メチルピリジン、3-(2,3,4-トリ  
メトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-トリフルオロメチル-2-メトキシ-4-メチル  
ピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-2,4-ジクロロ-5-トリ  
フルオロメチルピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-4-クロ  
ロ-5-トリフルオロメチル-2-メトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチ  
ルベンゾイル)-5-クロロ-4-エチニル-2-メトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメト  
キシ-6-メチルベンゾイル)-5-クロロ-4-フルオロメチル-2-メトキシピリジン、3  
-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-ブromo-4-フルオロメチル-2-メ  
トキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-4-フルオロメチ  
ル-2-メトキシ-5-メチルピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル  
)-5-クロロ-4-ジフルオロメチル-2-メトキシピリジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-  
6-メチルベンゾイル)-5-エチル-4-トリフルオロメチル-2-メトキシピリジン、3-  
(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-クロロ-2-メトキシ-4-メチルピリ

ジン、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-プロモ-2-メトキシ-4-メチルピリジン及び3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-4-トリフルオロメチル-2-メトキシ-5-メチルピリジンから成る群から選択される少なくとも一つの3-ベンゾイル-2,4,5-置換ピリジン誘導体またはそれらの塩を有効成分として含有する、耐雨性を有する殺菌剤に関する。

#### 【0006】

上記3-ベンゾイル-2,4,5-置換ピリジン誘導体の塩としては、例えば塩酸塩、臭化水素酸塩、リン酸塩、硫酸塩または硝酸塩のような無機酸塩；酢酸塩、安息香酸塩、p-トルエンスルホン酸塩、メタンスルホン酸塩、またはプロパンスルホン酸塩のような有機酸塩が挙げられる。

#### 【0007】

上記化合物は、WO 02/2527に開示された製造方法によって得ることができる。また、Journal of Organic Chemistry., 58, 7832(1993)、European Journal of Organic Chemistry., 7, 1371-1376(2001)及び後記合成例に準じた方法を用いることによっても合成することができる。

#### 【0008】

具体的には、例えば、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル)(4-プロモ-5-クロロ-2-メトキシ-3-ピリジル)メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル)(5-クロロ-4-エチル-2-メトキシ-3-ピリジル)メタノール、(4,5-ジメトキシ-2-メチルフェニル)(4,5-ジクロロ-2-メトキシ-3-ピリジル)メタノール、(5-エトキシ-4-メトキシ-2-メチルフェニル)(4,5-ジクロロ-2-メトキシ-3-ピリジル)メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル)(4-プロモ-5-クロロ-2-エトキシ-3-ピリジル)メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル)(5-クロロ-2-エトキシ-4-メチル-3-ピリジル)メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル)(5-プロモ-4-クロロ-2-エトキシ-3-ピリジル)メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル)(4-クロロ-5-ヨード-2-メトキシ-3-ピリジル)メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル)(5-ヨード-2,4-ジメトキシ-3-ピリジル)メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル)(5-クロロ-2-メトキシ-4-メチルチオ-3-ピリジル)メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-

メチルフェニル) (5-クロロ-2,4-ジメトキシ-3-ピリジル) メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (4,5-ジブromo-2-メトキシ-3-ピリジル) メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (4-ブromo-2-メトキシ-5-メチル-3-ピリジル) メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (5-ブromo-4-トリフルオロメチル-2-メトキシ-3-ピリジル) メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (4,5-ジクロロ-2-メトキシ-3-ピリジル) メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (2,4-ジクロロ-5-メチル-3-ピリジル) メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (2,4-ジクロロ-5-ヨード-3-ピリジル) メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (2-フルオロ-4-ヨード-5-メチル-3-ピリジル) メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (2-フルオロ-4,5-ジメチル-3-ピリジル) メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (2-メトキシ-4,5-ジメチル-3-ピリジル) メタノール、(2-エトキシ-3,4-ジメトキシ-6-メチルフェニル) (2-エトキシ-4,5-ジメチル-3-ピリジル) メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (4,5-ジメチル-2-メチルチオ-3-ピリジル) メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (5-ブromo-4-クロロ-2-メトキシ-3-ピリジル) メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (4-クロロ-2-メトキシ-5-メチル-3-ピリジル) メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (2-クロロ-5-トリフルオロメチル-4-メチル-3-ピリジル) メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (5-トリフルオロメチル-2-メトキシ-4-メチル-3-ピリジル) メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (2,4-ジクロロ-5-トリフルオロメチル-3-ピリジル) メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (4-クロロ-5-トリフルオロメチル-2-メトキシ-3-ピリジル) メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (5-クロロ-4-エチニル-2-メトキシ-3-ピリジル) メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (5-クロロ-4-フルオロメチル-2-メトキシ-3-ピリジル) メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (5-ブromo-4-フルオロメチル-2-メトキシ-3-ピリジル) メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (4-フルオロメチル-2-メトキシ-5-メチル-3-ピリジル) メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (5-クロロ-4-ジフルオロメチル-2-メトキシ-3-ピリジ

ル)メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル)(5-エチル-4-トリフルオロメチル-2-メトキシ-3-ピリジル)メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル)(5-クロロ-2-メトキシ-4-メチル-3-ピリジル)メタノール、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル)(5-プロモ-2-メトキシ-4-メチル-3-ピリジル)メタノール及び(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル)(4-トリフルオロメチル-2-メトキシ-5-メチル-3-ピリジル)メタノールから成る群から選択される少なくとも一つのフェニルピリジルメタノール誘導体またはそれらの塩を酸化することにより製造することができる。

#### 【0009】

##### 【発明の実施の形態】

上記の3-ベンゾイル-2,4,5-置換ピリジン誘導体またはそれらの塩は、殺菌剤の有効成分、特に農園芸用殺菌剤の有効成分として有用である。農園芸用殺菌剤としては、例えばイネのいもち病、ごま葉枯病、紋枯病；ムギ類のうどんこ病、赤かび病、さび病、雪腐病、裸黒穂病、眼紋病、葉枯病、ふ枯病；カンキツの黒点病、そうか病；リンゴのモニリア病、うどんこ病、斑点落葉病、黒星病；ナシの黒星病、黒斑病；モモの灰星病、黒星病、フオモプシス腐敗病；ブドウの黒とう病、晩腐病、うどんこ病、べと病；カキの炭そ病、落葉病；ウリ類の炭そ病、うどんこ病、つる枯病、べと病；トマトの輪紋病、葉かび病、疫病；アブラナ科野菜の黒斑病、バレイショの夏疫病、疫病；イチゴのうどんこ病；種々の作物の灰色かび病、菌核病等の病害の防除に有効であるが、特にムギ類、野菜類のうどんこ病およびイネのいもち病に優れた防除効果を示す。また、フザリウム菌、ピシウム菌、リゾクトニア菌、バーティシリウム菌、プラズモディオホーラ菌等の植物病原菌によって引き起こされる土壌病害の防除にも有効である。

#### 【0010】

また、本発明に係る有効成分化合物（以下、本発明化合物と略す）は、優れた耐雨性を有し、薬剤散布後に作物が降雨を被った場合においても上記防除効果を持続するので、降雨の多い条件での使用に有効である。

#### 【0011】

本発明化合物は、通常、該化合物と各種農業上の補助剤とを混合して粉剤、粒

剤、顆粒水和剤、水和剤、水性懸濁剤、油性懸濁剤、水溶剤、乳剤、液剤、ペースト剤、エアゾール剤、微量散布剤などの種々の形態に製剤して使用されるが、本発明の目的に適合するかぎり、通常の当該分野で用いられているあらゆる製剤形態にすることができる。製剤に使用する補助剤としては、珪藻土、消石灰、炭酸カルシウム、タルク、ホワイトカーボン、カオリン、ベントナイト、カオリナイト及びセリサイトの混合物、クレー、炭酸ナトリウム、重曹、芒硝、ゼオライト、澱粉などの固型担体；水、トルエン、キシレン、ソルベントナフサ、ジオキサン、アセトン、イソホロン、メチルイソブチルケトン、クロロベンゼン、シクロヘキサン、ジメチルスルホキシド、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド、N-メチル-2-ピロリドン、アルコールなどの溶剤；脂肪酸塩、安息香酸塩、アルキルスルホコハク酸塩、ジアルキルスルホコハク酸塩、ポリカルボン酸塩、アルキル硫酸エステル塩、アルキル硫酸塩、アルキルアリール硫酸塩、アルキルジグリコールエーテル硫酸塩、アルコール硫酸エステル塩、アルキルスルホン酸塩、アルキルアリールスルホン酸塩、アリールスルホン酸塩、リグニンスルホン酸塩、アルキルジフェニルエーテルジスルホン酸塩、ポリスチレンスルホン酸塩、アルキルリン酸エステル塩、アルキルアリールリン酸塩、スチリルアリールリン酸塩、ポリオキシエチレンアルキルエーテル硫酸エステル塩、ポリオキシエチレンアルキルアリールエーテル硫酸塩、ポリオキシエチレンアルキルアリールエーテル硫酸エステル塩、ポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸塩、ポリオキシエチレンアルキルアリールリン酸エステル塩、ナフタレンスルホン酸ホルマリン縮合物の塩のような陰イオン系の界面活性剤や展着剤；ソルビタン脂肪酸エステル、グリセリン脂肪酸エステル、脂肪酸ポリグリセライド、脂肪酸アルコールポリグリコールエーテル、アセチレングリコール、アセチレンアルコール、オキシアルキレンブロックポリマー、ポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルアリールエーテル、ポリオキシエチレンスチリルアリールエーテル、ポリオキシエチレングリコールアルキルエーテル、ポリオキシエチレン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレングリセリン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレン硬化ヒマシ油、ポリオキシプロピレン脂肪酸エステルのような非イオン系の界面活性剤や展着

剤；オリーブ油、カポック油、ひまし油、シュロ油、椿油、ヤシ油、ごま油、トウモロコシ油、米ぬか油、落花生油、綿実油、大豆油、菜種油、亜麻仁油、きり油、液状パラフィンなどの植物油や鉱物油などが挙げられる。これら補助剤は本発明の目的から逸脱しないかぎり、当該分野で知られたものの中から選んで用いることができる。また、増量剤、増粘剤、沈降防止剤、凍結防止剤、分散安定剤、薬害軽減剤、防黴剤など通常使用される各種補助剤も使用することができる。本発明化合物と各種補助剤との配合割合は、一般に0.005 : 99.995 ~95 : 5、望ましくは0.2 : 99.8 ~90 : 10である。これら製剤の実際の使用に際しては、そのまま使用するか、または水等の希釈剤で所定濃度に希釈し、必要に応じて各種展着剤を添加して使用することができる。

#### 【0012】

本発明化合物の使用濃度は、対象作物、使用方法、製剤形態、施用量などの違いによって異なり、一概に規定できないが、茎葉処理の場合、有効成分当たり普通0.1~10,000 ppm、望ましくは、1~2,000 ppm である。土壌処理の場合には、普通10~100,000 g/ha、望ましくは、200~20,000 g/haである。

#### 【0013】

本発明化合物は、その種々の製剤またはその希釈物の施用に関して、通常一般に行なわれている施用方法すなわち、散布（例えば散布、噴霧、ミスティング、アトマイジング、散粒、水面施用等）、土壌施用（混入、灌注等）、表面施用（塗布、粉衣、被覆等）等により行うことができる。また、いわゆる超高濃度少量散布法（ultra low volume）により施用することもできる。この方法においては、活性成分を100 %含有することが可能である。

#### 【0014】

本発明化合物は、必要に応じて他の農薬、例えば、殺菌剤、殺虫剤、殺ダニ剤、殺線虫剤、抗ウイルス剤、誘引剤、除草剤、植物成長調製剤などと、混用、併用することができ、この場合には一層優れた効果を示すこともある。

#### 【0015】

上記他の農薬中の、殺菌剤の有効成分化合物（一般名；一部申請中を含む）としては、例えば、メパニピリム（Mepanipyrim）、ピリメサニル（P

yrimethanil)、シプロジニル (Cyprodinil) のようなピリミジナミン系化合物; フルアジナム (Fluazinam) のようなピリジナミン系化合物;

トリアジメホン (Triadimefon)、ビテルタノール (Bitertanol)、トリフルミゾール (Triflumizole)、エタコナゾール (Etaconazole)、プロピコナゾール (Propiconazole)、ペンコナゾール (Penconazole)、フルシラゾール (Flusilazole)、マイクロブタニル (Myclobutanil)、シプロコナゾール (Cyproconazole)、ターブコナゾール (Terbuconazole)、ヘキサコナゾール (Hexaconazole)、ファーコナゾールシス (Furconazole-cis)、プロクロラズ (Prochloraz)、メトコナゾール (Metconazole)、エポキシコナゾール (Epoxyconazole)、テトラコナゾール (Tetraconazole)、オキシポコナゾール硫酸塩 (Oxpoconazole fumarate) シプロコナゾール (Sipconazole)、プロチオコナゾール (Prothioconazole) のようなアゾール系化合物;

キノメチオネート (Quinomethionate) のようなキノキサリン系化合物;

マンネブ (Maneb)、ジネブ (Zineb)、マンゼブ (Mancozeb)、ポリカーバメート (Polycarbamate)、メチラム (Metiram)、プロピネブ (Propineb) のようなジチオカーバメート系化合物;

フサライド (Fthalide)、クロロタロニル (Chlorothalonil)、キントゼン (Quintozene) のような有機塩素系化合物;

ベノミル (Benomyl)、チオフアネートメチル (Thiophanate-Methyl)、カーベンダジム (Carbendazim)、シアゾファミド (Cyazofamid) のようなイミダゾール系化合物;

シモキサニル (Cymoxanil) のようなシアノアセトアミド系化合物;

メタラキシル (Metaxyl)、メタラキシルM (Metaxyl

M)、オキサジキシル (Oxadi xyl)、オフレース (Ofurace)、ベナラキシル (Benalaxyl)、フララキシル (Furalaxyl)、シプロフラム (Cyprofuram) のようなフェニルアミド系化合物;

ジクロフルアニド (Dichlofluani d) のようなスルフェン酸系化合物;

水酸化第二銅 (Cuprichydroxide)、有機銅 (Oxine Copper) のような銅系化合物;

ヒメキサゾール (Hymexazol) のようなイソキサゾール系化合物;

ホセチルアルミニウム (Fosetyl-Al)、トルコホスメチル (Tolcofos-Methyl)、S-ベンジル O, O-ジイソプロピルホスホチオエート、O-エチル S, S-ジフェニルホスホロジチオエート、アルミニウムエチルハイドロゲンホスホネートのような有機リン系化合物;

キャプタン (Captan)、キャプタホル (Captafol)、フォルペット (Folpet) のようなN-ハロゲノチオアルキル系化合物;

プロシミドン (Procymidone)、イプロジオン (Iprodione)、ビンクロゾリン (Vinclozolin) のようなジカルボキシイミド系化合物;

フルトラニル (Flutolanil)、メプロニル (Mepronil)、ゾキサミド (Zoxamid)、チアジニル (Tiadinil) のようなベンズアニリド系化合物;

トリホリン (Triforine) のようなピペラジン系化合物;

ピリフェノックス (Pyriphenox) のようなピリジン系化合物;

フェナリモル (Fenarimol)、フルトリアフォル (Flutriafol) のようなカルビノール系化合物;

フェンプロピディン (Fenpropidine) のようなピペリジン系化合物;

フェンプロピモルフ (Fenpropimorph) のようなモルフォリン系化合物;

フェンチンヒドロキシド (Fentin Hydroxide)、フェンチン

アセテート (Fentini Acetate) のような有機スズ系化合物;

ペンシキュロン (Pencycuron) のような尿素系化合物;

ジメトモルフ (Dimethomorph)、フルモルフ (Flumorph)  
) のようなシンナミック酸系化合物;

ジエトフェンカルブ (Diethofencarb) のようなフェニルカーバ  
メート系化合物;

フルジオキシニル (Fludioxonil)、フェンピクロニル (Fenp  
iclonil) のようなシアノピロール系化合物;

アゾキシストロビン (Azoxystrobin)、クレソキシムメチル (K  
resoxim-Methyl)、メトミノフェン (Metominofen)  
、トリフロキシストロビン (Trifloxystrobin)、ピコキシスト  
ロビン (Picoxystrobin)、オリザストロビン (Oryzast  
robin)、ジモキシストロビン (Dimoxystrobin)、フルオキサ  
ストロビン (Fluoxastrobin) のようなストロビルリン系化合物;

ファモキサドン (Famoxadone) のようなオキサゾリジノン系化合物  
;

エタボキサム (Ethaboxam) のようなチアゾールカルボキサミド系化  
合物;

シルチオフアム (Siltthiopham) のようなシリルアミド系化合物;

イプロバリカルブ (Iprovalicarb)、ベンチアバリカルブ (be  
nthiavalicarb) のようなアミノアシッドアミドカーバメート系化  
合物;

フェナミドン (Fenamidone) のようなイミダゾリジン系化合物;

フェンヘキサミド (Fenhexamid) のようなヒドロキシアニリド系  
化合物;

フルスルファミド (Flusulfamid) のようなベンゼンスルホンアミ  
ド系化合物; シフルフェナミド (Cyflufenamid) のようなオキシム  
エーテル系化合物;

フェノキサニル (Fenoxanil) のようなフェノキシアミド系化合物;

シメコナゾール (Simeconazole) のようなトリアゾール系化合物

;

アトラキノン系化合物; クロトン酸系化合物; 抗生物質またその他の化合物として、イソプロチオラン (Isoprothiolane)、トリシクラゾール (Tricyclazole)、ピロキロン (Pyroquilon)、ジクロメジン (Diclomezine)、プロベナゾール (Probenazole)、キノキシフェン (Quinoxifen)、プロパモカルブ塩酸塩 (Propamocarb Hydrochloride)、スピロキサミン (Spiroxamine) クロルピクリン (Chloropicrin)、ダゾメット (Dazomet)、カーバムナトリウム塩 (Metamsodium)、ニコビフェン (Nicobifen)、メトラフェノン (Metrafenone)、MTF-753、UBF-307、ジクロシメット (Dilocymet)、プロキンアジド (Proquinazid) などが挙げられる。

#### 【0016】

上記他の農薬中の、殺虫剤、殺ダニ剤、或いは殺線虫剤、すなわち殺害虫剤の有効成分化合物 (一般名; 一部申請中を含む) としては、例えばプロフェノホス (Profenofos)、ジクロルボス (Dichlorvos)、フェナミホス (Fenamiphos)、フェニトロチオン (Fenitrothion)、EPN、ダイアジノン (Diazinon)、クロルピリホスメチル (Chlorpyrifos-methyl)、アセフェート (Acephate)、プロチオホス (Prothiofos)、ホスチアゼート (Fosthiate)、ホスホカルブ (Phosphocarb)、カズサホス (Cadusafos)、ジスルフトン (Dislufoton) のような有機リン酸エステル系化合物;

カルバリル (Carbaryl)、プロポキスル (Propoxur)、アルジカルブ (Aldicarb)、カルボフラン (Carbofuran)、チオジカルブ (Thiodicarb)、メソミル (Methomyl)、オキサミル (Oxamyl)、エチオフェンカルブ (Ethiofencarb)、ピリミカルブ (Pirimicarb)、フェノブカルブ (Fenobucarb)

、カルボスルファン (Carbosulfan)、ベンフラカルブ (Benfurcarb) のようなカーバメート系化合物；

カルタップ (Cartap)、チオシクラム (Thiocyclam) のようなネライストキシン誘導体；

ジコホル (Dicofol)、テトラジホン (Tetradifon) のような有機塩素系化合物；

酸化フェンブタスズ (Fenbutatin Oxide) のような有機金属系化合物；

フェンバレレート (Fenvalerate)、ペルメトリン (Permethrin)、シペルメトリン (Cypermethrin)、デルタメトリン (Deltamethrin)、シハロトリン (Cyhalothrin)、テフルトリン (Tefluthrin)、エトフェンプロックス (Ethofenprox)、フルフェンプロックス (Flufenprox)、イミデート (Imidate) のようなピレスロイド系化合物；

ジフルベンズロン (Diflubenzuron)、クロルフルアズロン (Chlorfluazuron)、テフルベンズロン (Teflubenzuron)、フルフェノクスロン (Flufenoxuron)、ビストリフルロン (Bistrifluron)、ノビフルムロン (Noviflumuron) のようなベンゾイルウレア系化合物；

メトプレン (Methoprene) のような幼若ホルモン様化合物；

ピリダベン (Pyridaben) のようなピリダジノン系化合物；

フェンピロキシメート (Fenpyroximate)、フィプロニル (Fipronil)、テブフェンピラド (Tebufenpyrad)、エチピロール (Ethiprole)、トルフェンピラド (Tolfenpyrad)、アセトプロール (Acetoprole) のようなピラゾール系化合物；

イミダクロプリド (Imidacloprid)、ニテンピラム (Nitenpyram)、アセタミプリド (Acetamiprid)、チアクロプリド (Thiacloprid)、チアメトキサム (Thiamethoxam)、クロチアニジン (Clothianidin)、ニジノテフラン (Nidinot

efuran)、ディノテフラン (Dinotefuran) などのネオニコチノイド;

テブフェノジド (Tebufenozide)、メトキシフェノジド (Methoxyfenozide)、クロマフェノジド (Chromafenozide) などのヒドラジン系化合物;

ピリダリル (Pyridaryl)、フロニカミド (Flonicamid) などのようなピリジン系化合物;

スピロディクロフェン (Spirodiclofen) などのようなテトロニック酸系化合物;

フルアクリピリム (Fluacrypyrin) などのようなストロビルリン系化合物;

フルフェネリム (Flufenimer) などのようなピリジナミン系化合物;

ジニトロ系化合物、有機硫黄化合物、尿素系化合物、トリアジン系化合物、ヒドラゾン系化合物、また、その他の化合物として、ブプロフェジン (Buprofezin)、ヘキシチアゾクス (Hexythiazox)、アミトラズ (Amitraz)、クロルジメホルム (Chlordimeform)、シラフルオフエン (Silafluofen)、トリアザメイト (Triazamate)、ピメトロジン (Pymetrozine)、ピリミジフェン (Pyrimidifen)、クロルフェナピル (Chlorfenapyr)、インドキサカルブ (Indoxacarb)、アセキノシル (Acequinocyl)、エトキサゾール (Etoxazole)、シロマジン (Cyromazine)、1, 3-ジクロロプロペン (1, 3-dichloropropene)、ベルブチン (Verbutin)、スピロメシフェン (Spiromesifen)、チアゾリルシナノニトリル (Thiazolylcinnanonitrile)、アミドフルメット (Amidoflumet) のような化合物; AKD-1022、IKA-2000などが挙げられる。更に、BT剤、昆虫病原ウイルス剤などのような微生物農薬、アベルメクチン (Avermectin)、ミルベマイシン (Milbemycin)、スピノサッド (Spinosad)、エ

マメクチンベンゾエート (Emamectin Benzoate) のような抗生物質などと、混用、併用することもできる。

### 【0017】

#### 【実施例】

次に本発明のベンゾイルピリジン誘導体およびその製造用中間体の具体的合成例を記載する。

### 【0018】

#### 合成例 1)

3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-4,5-ジクロロ-2-メトキシピリジン (化合物 No. 1-15) の合成

(a) ジイソプロピルアミン 34.2 g (340 mmol) をテトラヒドロフラン 400 mL に溶解した溶液中に、-20 °C で n-ブチルリチウム (1.57 mol/L ヘキサン溶液) 222 mL を滴下し、1 時間攪拌した。溶液を -78 °C に冷却し、2-フルオロピリジン 32.0 g (330 mmol) をテトラヒドロフラン 50 mL に溶解した溶液を添加し、4 時間攪拌した後に、ヨウ素 87.1 g (341 mmol) をテトラヒドロフラン 150 mL に溶解した溶液を添加し、1 時間攪拌した。混合物に水 200 mL を加えて反応を停止し、減圧下、テトラヒドロフランを留去した。エーテルで抽出後、有機層を硫酸ナトリウムで乾燥、ろ過し、減圧下で溶媒を留去し、2-フルオロ-3-ヨードピリジンの粗生成物 67.4 g (粗収率 92 %) を得た。

$^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3, 400 \text{ MHz}) : \delta (\text{ppm}) = 6.91-6.88(\text{m}, 1\text{H}), 8.08-8.12(\text{m}, 2\text{H})$

(b) ジイソプロピルアミン 30.2 g (302 mmol) をテトラヒドロフラン 380 mL に溶解した溶液中に、-20 °C で n-ブチルリチウム (1.57 mol/L ヘキサン溶液) 189 mL を滴下し、1 時間攪拌した。溶液を -78 °C に冷却し、工程 (a) で得られた 2-フルオロ-3-ヨードピリジンの粗生成物 67.4 g (302 mmol) をテトラヒドロフラン 100 mL に溶解した溶液を添加し、1 時間攪拌した後に、混合物に水 300 mL を加えて反応を停止し、減圧下、テトラヒドロフランを留去した。エーテルで抽出後、有機層を硫酸ナトリウムで乾燥、ろ過し、減圧下で溶媒を留去し、2-フルオロ-4-ヨードピリジンの粗生成物 59.3 g (粗収率 89 %) を得た。

$^1\text{H-NMR}$ ( $\text{CDCl}_3$ , 400 MHz) :  $\delta$  (ppm) = 7.33(d, 1H,  $J$  = 2.8 Hz), 7.51(d, 1H,  $J$  = 5.2 Hz), 7.88(dd, 1H,  $J$ =5.2 Hz, 2.8 Hz)

(c) 工程 b で得られた 2-フルオロ-4-ヨードピリジンの粗生成物 59.4 g (253 mmol) にメタノール 500 mL を加え溶解させ、ナトリウムメトキシド 21.5 g (398 mmol) を加えて 3 時間加熱還流した。水 300 mL を加えて反応を停止し、減圧下、メタノールを留去した。エーテルで抽出後、有機層を硫酸ナトリウムで乾燥、ろ過し、減圧下で溶媒を留去し、4-ヨード-2-メトキシピリジンの粗生成物 56.7 g (粗収率 91 %) を得た。

$^1\text{H-NMR}$ ( $\text{CDCl}_3$ , 400 MHz) :  $\delta$  (ppm) = 3.86(s, 3H), 7.12-7.16(m, 2H), 7.79(d, 1H,  $J$  = 5.6 Hz)

(d) イソプロピルマグネシウムクロライド 50.6 mL (2 mol/L テトラヒドロフラン溶液) を氷冷し、工程 (c) で得られた 4-ヨード-2-メトキシピリジンの粗生成物 19.8 g (84.3 mmol) をテトラヒドロフラン 80 mL に溶解した溶液を添加し 0 °C で 1 時間、室温で 1 時間攪拌した。その後、N-クロロ琥珀酸イミド 16.9 g (127 mmol) を徐々に加え、室温で 1 時間攪拌した。水 100 mL を加え、反応を停止し、減圧下、テトラヒドロフランを留去した。エーテルで抽出後、有機層を硫酸ナトリウムで乾燥、ろ過し、減圧下で溶媒を留去し、4-クロロ-2-メトキシピリジンの粗生成物 11.0 g (粗収率 91 %) を得た。

$^1\text{H-NMR}$ ( $\text{CDCl}_3$ , 400 MHz) :  $\delta$  (ppm) = 3.91(s, 3H), 6.70(d, 1H,  $J$  = 2.0 Hz), 6.81(dd, 1H,  $J$  = 6.0 Hz, 2.0 Hz), 7.99(d, 1H,  $J$  = 6.0 Hz)

(e) 工程 (d) で得られた 4-クロロ-2-メトキシピリジンの粗生成物 10.0 g (69.9 mmol) をジメチルホルムアミド 100 mL に溶解させ、N-クロロ琥珀酸イミド 37.2 g (279 mmol) を加え室温で 12 時間攪拌した。水 400 mL を加え、反応を停止し、エーテルで抽出後、有機層を飽和食塩水で洗浄し、硫酸ナトリウムで乾燥、ろ過し、減圧下で溶媒を留去し、4,5-ジクロロ-2-メトキシピリジンの粗生成物 9.10 g (粗収率 73 %) を得た。

$^1\text{H-NMR}$ ( $\text{CDCl}_3$ , 400 MHz) :  $\delta$  (ppm) = 3.90(s, 3H), 6.85(s, 1H), 8.14(s, 1H)

(f) ジイソプロピルアミン 2.40 g(23.7 mmol) をテトラヒドロフラン 30 mL に溶解した溶液中に、 $-20^\circ\text{C}$  で  $n$ -ブチルリチウム (1.57 mol/L ヘキサン溶液) 15.1 mL を滴下し、1 時間攪拌した。溶液を  $-78^\circ\text{C}$  に冷却し、工程 (e) で得られた 4,5-ジクロロ-2-メトキシピリジン 4.22 g(23.6 mmol) をテトラヒドロフラン 20 mL に溶解した溶液を添加し、2 時間攪拌した後に、2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンズアルデヒド 5.00 g(23.8 mmol) をテトラヒドロフラン 20 mL に溶解した溶液を添加し 30 分攪拌した。混合物に水 50 mL を加えて反応を停止し、減圧下、テトラヒドロフランを留去した。エーテルで抽出後、有機層を硫酸ナトリウムで乾燥、ろ過し、減圧下で溶媒を留去し、シリカゲルカラムクロマトグラフィーによって精製し (2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (4,5-ジクロロ-2-メトキシ-3-ピリジル) メタノール 4.66 g (収率 51 %) を得た。

$^1\text{H-NMR}$ ( $\text{CDCl}_3$ , 400 MHz) :  $\delta$  (ppm) = 2.32(s, 3H), 3.52(s, 3H), 3.77(s, 3H), 3.82(s, 3H), 4.11(s, 3H), 5.32(d, 1H,  $J=10.0$  Hz), 6.21(d, 1H,  $J=10.0$  Hz), 6.55(s, 1H), 8.07(s, 1H)

(g) 工程 (f) で得られた (2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (4,5-ジクロロ-2-メトキシ-3-ピリジル) メタノール 4.66 g(12.0 mmol) をトルエン 30 mL に溶解させた溶液に、二酸化マンガン 13.8 g(159 mmol) を加え、2 時間加熱還流を行った。室温に冷却後、セライトを用いて二酸化マンガンを除去した後、減圧下、トルエンを留去し、シリカゲルカラムクロマトグラフィーによって精製し 3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-4,5-ジクロロ-2-メトキシピリジン 2.98 g (収率 65 %) を得た。

$^1\text{H-NMR}$ ( $\text{CDCl}_3$ , 400 MHz) :  $\delta$  (ppm) = 2.46(s, 3H), 3.45(s, 3H), 3.74(s, 3H), 3.90(s, 3H), 4.00(s, 3H), 6.55(s, 1H), 8.13(s, 1H)

#### 【0019】

##### 合成例 2)

3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-2-メトキシ-4,5-ジメチルピリジン

ン (化合物 No. 1-20) の合成

(a) ジイソプロピルアミン 4.02 g (39.8 mmol) をテトラヒドロフラン 70 mL に溶解した溶液中に -78 °C で n-ブチルリチウム (1.57 mol/L ヘキサン溶液) 26.5 mL を滴下し、30 分攪拌した。この溶液に、2-フルオロ-5-メチルピリジン 4.42 g (39.8 mmol) をテトラヒドロフラン 18 mL に溶解した溶液を添加し、4 時間攪拌した後、ヨウ素 10.1 g (39.8 mmol) をテトラヒドロフラン 27 mL に溶解した溶液を添加し、2 時間攪拌した。水 16 mL、チオ硫酸ナトリウム水溶液 120 mL を投入し、エーテルにて抽出後、有機層を硫酸マグネシウムで乾燥、ろ過し、減圧下で溶媒を留去し、得られた粗生成物をシリカゲルクロマトグラフィーにて精製し、2-フルオロ-3-ヨード-5-メチルピリジン 3.15 g (収率 33 %) を得た。

$^1\text{H-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ , 400 MHz) :  $\delta$  (ppm) = 2.27 (s, 3H), 7.95 (m, 2H)

(b) ジイソプロピルアミン 1.34 g (13.3 mmol) をテトラヒドロフラン 27 mL に溶解した溶液中に -78 °C で n-ブチルリチウム 8.90 mL (1.57 mol/L ヘキサン溶液) を滴下し、30 分攪拌した。この溶液に、工程 (a) で得られた 2-フルオロ-3-ヨード-5-メチルピリジン 3.15 g (13.3 mmol) をテトラヒドロフラン 5 mL に溶解した溶液を添加し、1 時間攪拌した後に、2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンズアルデヒド 2.79 g (13.3 mmol) をテトラヒドロフラン 5 mL に溶解した溶液を添加し、2 時間攪拌した。室温に昇温後、水 50 mL を加え、エーテルにて抽出後、有機層を硫酸マグネシウムで乾燥、ろ過し、減圧下で溶媒を留去し、得られた粗生成物をシリカゲルクロマトグラフィーにて精製し、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (2-フルオロ-4-ヨード-5-メチル-3-ピリジル) メタノール 4.45 g (収率 75 %) を得た。

$^1\text{H-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ , 400 MHz) :  $\delta$  (ppm) = 2.21 (s, 3H), 2.42 (s, 3H), 3.72 (s, 3H), 3.79 (s, 3H), 3.81 (s, 3H), 4.97 (d, 1H,  $J = 10.0$  Hz), 6.08 (d, 1H,  $J = 10.0$  Hz), 6.46 (s, 1H), 7.86 (s, 1H)

(c) 工程 (b) で得られた (2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (2-フルオロ-4-ヨード-5-メチル-3-ピリジル) メタノール 4.35 g (9.70 mmol) をトルエン 130

mLに溶解させた溶液に、二酸化マンガン17.3 g(0.18 mol)を加え、2時間還流加熱を行った。室温に冷却後、セライトを用いて二酸化マンガンを除去した後、減圧下トルエンを留去し、シリカゲルクロマトグラフィーにて精製し、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-2-フルオロ-4-ヨード-5-メチルピリジン(融点140-141 °C)2.80 g(収率65 %)を得た。

$^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3, 400 \text{ MHz}) : \delta (\text{ppm}) = 2.41(\text{s}, 3\text{H}), 2.50(\text{s}, 3\text{H}), 3.42(\text{s}, 3\text{H}), 3.90(\text{s}, 3\text{H}), 3.74(\text{s}, 3\text{H}), 6.57(\text{s}, 1\text{H}), 7.94(\text{s}, 1\text{H})$

(d) 工程(c)で得られた3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-2-フルオロ-4-ヨード-5-メチルピリジン1.50 g(3.37 mmol)、炭酸カリウム1.40 g(10.1 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム0.39 g (0.34 mmol)、ジオキサン15 mL、50 %トリメチルボロキシシロキサン0.42 g(1.67 mmol)を混合し、6時間還流加熱を行った。室温に冷却後、セライトろ過し、酢酸エチル及びテトラヒドロフランにて洗浄後、減圧下で溶媒を留去し、得られた粗生成物をシリカゲルクロマトグラフィーにて精製し、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-2-フルオロ-4,5-ジメチルピリジン0.79 g (収率70 %)を得た。

$^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3, 400 \text{ MHz}) : \delta (\text{ppm}) = 2.28(\text{s}, 3\text{H}), 2.32(\text{s}, 3\text{H}), 2.42(\text{s}, 3\text{H}), 3.35(\text{s}, 3\text{H}), 3.74(\text{s}, 3\text{H}), 3.90(\text{s}, 3\text{H}), 6.57(\text{s}, 1\text{H}), 7.94(\text{s}, 1\text{H})$

(e) 工程(d)で得られた3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-2-フルオロ-4,5-ジメチルピリジン0.20 g(0.60 mmol)をメタノール2.5 mLに溶解させた溶液に、60 %水素化ナトリウム0.06 g (1.5 mmol)をメタノール1 mLに溶解させた溶液を滴下し、16時間還流加熱した。室温に冷却後、水5 mLを加え希塩酸で弱酸性化し、エーテルにて抽出後、食塩水で洗浄し、有機層を硫酸マグネシウムで乾燥、ろ過し、減圧下で溶媒を留去し、得られた粗生成物をシリカゲルクロマトグラフィーにて精製し、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-2-メトキシ-4,5-ジメチルピリジン89.0 mg (収率43 %)を得た。

$^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3, 400 \text{ MHz}) : \delta (\text{ppm}) = 2.19(\text{s}, 3\text{H}), 2.21(\text{s}, 3\text{H}), 2.39(\text{s}, 3\text{H}), 3.24(\text{s}, 3\text{H}), 3.70(\text{s}, 3\text{H}), 3.74(\text{s}, 3\text{H}), 3.87(\text{s}, 3\text{H}), 6.53(\text{s}, 1\text{H}), 7.87(\text{s}, 1\text{H})$

s, 1H)

【0020】

合成例 3)

3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-クロロ-2-メトキシ-4-メチルピリジン(化合物No. 1-35)の合成

3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-4,5-ジクロロ-2-メトキシピリジン(化合物No. 15) 2.10 g(5.44 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム0.64 g(0.55 mmol)を1,4-ジオキサン30 mLに溶解した溶液中に、炭酸カリウム2.29 g(16.6 mmol)、トリメチルボロキシ(50 wt%テトラヒドロフラン溶液)1.38 g(5.49 mmol)を添加し、加熱還流下10時間攪拌した。水を加えて反応を停止し、水層を酢酸エチルで抽出した後、無水硫酸ナトリウムで乾燥、ろ過し、減圧下溶媒を留去した。粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-クロロ-2-メトキシ-4-メチルピリジン1.49 g(収率75%)を得た。

$^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3, 400 \text{ MHz}) : \delta (\text{ppm}) = 2.31(\text{s}, 3\text{H}), 2.40(\text{s}, 3\text{H}), 3.30(\text{s}, 3\text{H}), 3.73(\text{s}, 3\text{H}), 3.74(\text{s}, 3\text{H}), 3.88(\text{s}, 3\text{H}), 6.54(\text{s}, 1\text{H}), 8.06(\text{s}, 1\text{H})$

【0021】

合成例 4)

3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-4-トリフルオロメチル-2-メトキシ-5-メチルピリジン(化合物No. 1-37)の合成

(a) 2-クロロ-4-トリフルオロメチルピリジン5.05 g(27.8 mmol)、ナトリウムメトキシド3.59 g(66.5 mmol)をメタノール40 mLに溶解した溶液を加熱還流下4時間攪拌した。水を加えて反応を停止し、ジエチルエーテルで抽出した後に有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥、シリカゲルケーキにてろ過した。減圧下で溶媒を留去し、4-トリフルオロメチル-2-メトキシピリジン4.19 g(収率85%)を得た。

$^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3, 400 \text{ MHz}) : \delta (\text{ppm}) = 3.96(\text{s}, 3\text{H}), 6.95(\text{s}, 1\text{H}), 7.05(\text{d}, 1\text{H}, J = 5.2 \text{ Hz}), 8.29(\text{d}, 1\text{H}, J = 5.2 \text{ Hz})$

(b) 工程 (a) で得られた4-トリフルオロメチル-2-メトキシピリジン8.21 g(46.4 mmol)、酢酸ナトリウム7.98 g(97.3 mmol)を酢酸15 mLに溶解した溶液に、臭素4.00 mL(78.1 mmol)を滴下し4日間攪拌した。水酸化カリウム水溶液を加えて反応を停止し、ジエチルエーテルで抽出した後に有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥、シリカゲルケーキにてろ過した。減圧下で溶媒を留去し、5-ブromo-4-トリフルオロメチル-2-メトキシピリジンと原料の4-トリフルオロメチル-2-メトキシピリジンとの混合物5.81 g(モル比55:45)を得た。

$^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3, 400 \text{ MHz}) : \delta (\text{ppm}) = 3.94(\text{s}, 3\text{H}), 7.03(\text{s}, 1\text{H}), 8.37(\text{s}, 1\text{H})$

(c) ジイソプロピルアミン3.80 mL(27.1 mmol)をテトラヒドロフラン50 mLに溶解した溶液中に、0 °Cでn-ブチルリチウム(1.57 mol/Lヘキサン溶液)17.1 mLを滴下し、30分攪拌した。溶液を-78 °Cに冷却し、工程 (c) で得られた5-ブromo-4-トリフルオロメチル-2-メトキシピリジンと4-トリフルオロメチル-2-メトキシピリジンとの混合物5.81 g(モル比55:45)をテトラヒドロフラン10 mLに溶解した溶液を添加し、45分攪拌した。2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンズアルデヒド5.51 g(26.2 mmol)をテトラヒドロフラン15 mLに溶解した溶液を添加し、1時間攪拌した。混合物に水を加えて反応を停止し、減圧下テトラヒドロフランを留去した。酢酸エチルで抽出後、有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥、ろ過し、減圧下で溶媒を留去した。粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル)(5-ブromo-4-トリフルオロメチル-2-メトキシ-3-ピリジル)メタノール5.02 gを得た。

$^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3, 400 \text{ MHz}) : \delta (\text{ppm}) = 2.35(\text{s}, 3\text{H}), 3.29(\text{s}, 3\text{H}), 3.74(\text{s}, 3\text{H}), 3.82(\text{s}, 3\text{H}), 3.92(\text{s}, 3\text{H}), 4.87(\text{d}, 1\text{H}, J = 10.8 \text{ Hz}), 6.21(\text{d}, 1\text{H}, J = 10.8 \text{ Hz}), 6.51(\text{s}, 1\text{H}), 8.31(\text{s}, 1\text{H})$

(d) 工程 (c) で得られた(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル)(5-ブromo-4-トリフルオロメチル-2-メトキシ-3-ピリジル)メタノール4.80 g(10.3 mmol)をトルエン110 mLに溶解した溶液中に、二酸化マンガン20.0 g(230 mmol)

ol)を加え加熱還流下1時間攪拌した。室温まで冷却後、混合物をセライトろ過し、減圧下溶媒を留去した。粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-ブロモ-4-トリフルオロメチル-2-メトキシピリジン3.93 g(収率82%)を得た。

$^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3, 400 \text{ MHz}) : \delta (\text{ppm}) = 2.57(\text{s}, 3\text{H}), 3.36(\text{s}, 3\text{H}), 3.75(\text{s}, 3\text{H}), 3.86(\text{s}, 3\text{H}), 3.93(\text{s}, 3\text{H}), 6.59(\text{s}, 1\text{H}), 8.38(\text{s}, 1\text{H})$

(e) 工程(d)で得られた3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-5-ブロモ-4-トリフルオロメチル-2-メトキシピリジン0.60 g(1.29 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム0.10 g(0.09 mmol)をテトラヒドロフラン10 mLに溶解した溶液中に、0℃でジメチル亜鉛(1.0 mol/Lヘキサン溶液)3.80 mL(3.80 mmol)を滴下し、自然昇温させた後、室温で8日間攪拌した。水を加えて反応を停止し、減圧下テトラヒドロフランを留去した。酢酸エチルで抽出後、有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥、ろ過し、減圧下溶媒を留去した。粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル)-4-トリフルオロメチル-2-メトキシ-5-メチルピリジン0.50 g(収率96%)を得た。

$^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3, 400 \text{ MHz}) : \delta (\text{ppm}) = 2.41(\text{s}, 3\text{H}), 2.56(\text{s}, 3\text{H}), 3.29(\text{s}, 3\text{H}), 3.74(\text{s}, 3\text{H}), 3.83(\text{s}, 3\text{H}), 3.91(\text{s}, 3\text{H}), 6.58(\text{s}, 1\text{H}), 8.05(\text{s}, 1\text{H})$

#### 【0022】

上記合成例1から4及びWO 02/2527の合成例1～16に準じた方法で製造される本発明化合物を以下の第1表に示す。

#### 【0023】

【表 1】

第 1 表

No.	化合物名	物性
1-1	3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -4-ブロモ-5-クロロ-2-メトキシピリジン	融点 92-94 °C
1-2	3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -5-クロロ-4-エチル-2-メトキシピリジン	黄色油状物
1-3	3-(4,5-ジメトキシ-2-メチルベンゾイル) -4,5-ジクロロ-2-メトキシピリジン	融点 139-141 °C
1-4	3-(5-エトキシ-4-メトキシ-2-メチルベンゾイル) -4,5-ジクロロ-2-メトキシピリジン	融点 110-112 °C
1-5	3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -4-ブロモ-5-クロロ-2-エトキシピリジン	黄色油状物
1-6	3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -5-クロロ-2-エトキシ-4-メチルピリジン	黄色油状物
1-7	3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -5-ブロモ-4-クロロ-2-エトキシピリジン	淡黄色油状物
1-8	3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -4-クロロ-5-ヨード-2-メトキシピリジン	無色油状物
1-9	3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -5-ヨード-2,4-ジメトキシピリジン	無色油状物
1-10	3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -5-クロロ-2-メトキシ-4-メチルチオピリジン	融点 98-104 °C
1-11	3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -5-クロロ-2,4-ジメトキシピリジン	融点 93-94 °C
1-12	3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -4,5-ジブロモ-2-メトキシピリジン	融点 149-150 °C

【0024】

【表 2】

第1表つづき

No.	化合物名	物性
1-13	3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -4-ブromo-2-メトキシ-5-メチルピリジン	融点 140-142 °C
1-14	3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -5-ブromo-4-トリフルオロメチル-2-メトキシピリジン	融点 128-129 °C
1-15	3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -4,5-ジクロロ-2-メトキシピリジン	融点 84-86 °C
1-16	3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -2,4-ジクロロ-5-メチルピリジン	融点 78-80 °C
1-17	3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -2,4-ジクロロ-5-ヨードピリジン	油状物
1-18	3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -2-フルオロ-4-ヨード-5-メチルピリジン	融点 140-141 °C
1-19	3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -2-フルオロ-4,5-ジメチルピリジン	融点 91-92 °C
1-20	3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -2-メトキシ-4,5-ジメチルピリジン	融点 84-86 °C
1-21	3-(2-エトキシ-3,4-ジメトキシ-6-メチルベンゾイル) -2-エトキシ-4,5-ジメチルピリジン	融点 74-75 °C
1-22	3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -4,5-ジメチル-2-メチルチオピリジン	油状物
1-23	3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -5-ブromo-4-クロロ-2-メトキシピリジン	融点 84-87 °C
1-24	3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -4-クロロ-2-メトキシ-5-メチルピリジン	融点 88-90 °C

【0025】

【表 3】

第 1 表 つづき

No.	化合物名	物性
1-25	3-(2, 3, 4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -2-クロロ-5-トリフルオロメチル-4-メチルピリジン	
1-26	3-(2, 3, 4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -5-トリフルオロメチル-2-メトキシ-4-メチルピリジン	
1-27	3-(2, 3, 4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -2, 4-ジクロロ-5-トリフルオロメチルピリジン	
1-28	3-(2, 3, 4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -4-クロロ-5-トリフルオロメチル-2-メトキシピリジン	
1-29	3-(2, 3, 4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -5-クロロ-4-エチニル-2-メトキシピリジン	融点 113-115 °C
1-30	3-(2, 3, 4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -5-クロロ-4-フルオロメチル-2-メトキシピリジン	融点 82-84 °C
1-31	3-(2, 3, 4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -5-ブロモ-4-フルオロメチル-2-メトキシピリジン	
1-32	3-(2, 3, 4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -4-フルオロメチル-2-メトキシ-5-メチルピリジン	
1-33	3-(2, 3, 4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -5-クロロ-4-ジフルオロメチル-2-メトキシピリジン	
1-34	3-(2, 3, 4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -5-エチル-4-トリフルオロメチル-2-メトキシピリジン	

【表 4】

第 1 表つづき

No.	化合物名	物性
1-35	3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -5-クロロ-2-メトキシ-4-メチルピリジン	融点 84-88 °C
1-36	3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -5-プロモ-2-メトキシ-4-メチルピリジン	融点 111-114 °C
1-37	3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -4-トリフルオロメチル-2-メトキシ-5-メチルピリジン	融点 103-105 °C

## 【0026】

第 1 表中、Nos.1-1～1-34の化合物は、WO 02 / 2527 に具体的な記載がない化合物である。上記以外の化合物で後述の試験例に使用する化合物を第 2 表に示す。

【表 5】

第 2 表

No.	化合物名	物性
2-1	4-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -2-クロロ-5-メトキシ-3-メチルピリジン	融点 67-72 °C
2-2	4-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -3-トリフルオロメチル-5-メトキシ-2-メチルピリジン	融点 137-138 °C
2-3	4-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -2-ブromo-5-メトキシ-3-メチルピリジン	淡黄色 油状物
2-4	4-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -3-クロロ-5-メトキシ-2-メチルピリジン	融点 102-103 °C
2-5	3-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -2,4-ジメトキシピリジン	融点 74-75 °C
2-6	4-(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルベンゾイル) -2,3-ジクロロ-5-メトキシピリジン	融点 98-99 °C

## 【0027】

上記合成例 1 から 4 及び WO 02/2527 の合成例 1 ～ 16 に準じた方法で製造される本発明のフェニルピリジルメタノール誘導体を以下の第 3 表に示し、それらの NMR スペクトルデータを第 4 表に示す。

【表 6】

第 3 表

No.	化合物名
3-1	(2, 3, 4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (4-プロモ-5-クロロ-2-メトキシ-3-ピリジル) メタノール
3-2	(2, 3, 4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (5-クロロ-4-エチル-2-メトキシ-3-ピリジル) メタノール
3-3	(4, 5-ジメトキシ-2-メチルフェニル) (4, 5-ジクロロ-2-メトキシ-3-ピリジル) メタノール
3-4	(5-エトキシ-4-メトキシ-2-メチルフェニル) (4, 5-ジクロロ-2-メトキシ-3-ピリジル) メタノール
3-5	(2, 3, 4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (4-プロモ-5-クロロ-2-エトキシ-3-ピリジル) メタノール
3-6	(2, 3, 4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (5-クロロ-2-エトキシ-4-メチル-3-ピリジル) メタノール
3-7	(2, 3, 4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (5-プロモ-4-クロロ-2-エトキシ-3-ピリジル) メタノール
3-8	(2, 3, 4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (4-クロロ-5-ヨード-2-メトキシ-3-ピリジル) メタノール
3-9	(2, 3, 4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (5-ヨード-2, 4-ジメトキシ-3-ピリジル) メタノール
3-10	(2, 3, 4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (5-クロロ-2-メトキシ-4-メチルチオ-3-ピリジル) メタノール

【0028】

【表 7】

第3表つづき

No.	化合物名
3-11	(2, 3, 4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (5-クロロ-2, 4-ジメトキシ-3-ピリジル) メタノール
3-12	(2, 3, 4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (4, 5-ジプロモ-2-メトキシ-3-ピリジル) メタノール
3-13	(2, 3, 4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (4-プロモ -2-メトキシ-5-メチル-3-ピリジル) メタノール
3-14	(2, 3, 4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (5-プロモ -4-トリフルオロメチル-2-メトキシ-3-ピリジル) メタノール
3-15	(2, 3, 4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (4, 5-ジクロロ-2-メトキシ-3-ピリジル) メタノール
3-16	(2, 3, 4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (2, 4-ジクロロ-5-メチル-3-ピリジル) メタノール
3-17	(2, 3, 4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (2, 4-ジクロロ-5-ヨード-3-ピリジル) メタノール
3-18	(2, 3, 4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (2-フルオロ -4-ヨード-5-メチル-3-ピリジル) メタノール
3-19	(2, 3, 4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (2-フルオロ -4, 5-ジメチル-3-ピリジル) メタノール
3-20	(2, 3, 4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (2-メトキシ-4, 5-ジメチル-3-ピリジル) メタノール

【0029】

【表 8】

第 3 表 つづき

No.	化合物名
3-21	(2-エトキシ-3,4-ジメトキシ-6-メチルフェニル) (2-エトキシ-4,5-ジメチル-3-ピリジル)メタノール
3-22	(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (4,5-ジメチル-2-メチルチオ-3-ピリジル)メタノール
3-23	(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (5-プロモ-4-クロロ-2-メトキシ-3-ピリジル)メタノール
3-24	(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (4-クロロ-2-メトキシ-5-メチル-3-ピリジル)メタノール
3-25	(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (2-クロロ-5-トリフルオロメチル-4-メチル-3-ピリジル)メタノール
3-26	(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (5-トリフルオロメチル -2-メトキシ-4-メチル-3-ピリジル)メタノール
3-27	(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (2,4-ジクロロ -5-トリフルオロメチル-3-ピリジル)メタノール
3-28	(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (4-クロロ -5-トリフルオロメチル-2-メトキシ-3-ピリジル)メタノール
3-29	(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (5-クロロ-4- エチニル-2-メトキシ-3-ピリジル)メタノール
3-30	(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (5-クロロ-4- フルオロメチル-2-メトキシ-3-ピリジル)メタノール

【0030】

【表 9】

第3表つづき

No.	化合物名
3-31	(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (5-ブromo-4-フルオロメチル-2-メトキシ-3-ピリジル) メタノール
3-32	(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (4-フルオロメチル-2-メトキシ-5-メチル-3-ピリジル) メタノール
3-33	(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (5-クロロ-4-ジフルオロメチル-2-メトキシ-3-ピリジル) メタノール
3-34	(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (5-エチル-4-トリフルオロメチル-2-メトキシ-3-ピリジル) メタノール
3-35	(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (5-クロロ-2-メトキシ-4-メチル-3-ピリジル) メタノール
3-36	(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (5-ブromo-2-メトキシ-4-メチル-3-ピリジル) メタノール
3-37	(2,3,4-トリメトキシ-6-メチルフェニル) (4-トリフルオロメチル-2-メトキシ-5-メチル-3-ピリジル) メタノール

【0031】

【表 10】

第4表

化合物 No.	$^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3, 400 \text{ MHz}) : \delta (\text{ppm})$
3-1	2.33(s, 3H), 3.46(s, 3H), 3.77(s, 3H), 3.82(s, 3H), 3.94(s, 3H), 5.33(d, 1H, $J = 10.4 \text{ Hz}$ ), 6.17(d, 1H, $J = 10.4 \text{ Hz}$ ), 6.48(s, 1H), 8.06(s, 1H)
3-3	2.42(s, 3H), 3.70(s, 3H), 3.77(d, 1H, $J = 11.6 \text{ Hz}$ ), 3.86(s, 3H), 4.00(s, 3H), 6.32(d, 1H, $J = 11.6 \text{ Hz}$ ), 6.58(s, 1H), 6.72(s, 1H), 8.18(s, 1H)
3-4	1.30(t, 3H, $J = 6.8 \text{ Hz}$ ), 2.35(s, 3H), 3.74(d, 1H, $J = 11.2 \text{ Hz}$ ), 3.78(s, 3H), 3.86(q, 2H, $J = 6.8 \text{ Hz}$ ), 3.93(s, 3H), 6.24(d, 1H, $J = 11.2 \text{ Hz}$ ), 6.50(s, 1H), 6.65(s, 1H), 8.11(s, 1H)
3-5	1.41(t, 3H, $J = 4.4 \text{ Hz}$ ), 2.24(s, 3H), 3.77(s, 3H), 3.82(s, 3H), 4.09(s, 3H), 4.44(q, 2H, $J = 4.4 \text{ Hz}$ ), 5.36(d, 1H, $J = 9.6 \text{ Hz}$ ), 6.34(d, 1H, $J = 9.6 \text{ Hz}$ ), 6.48(s, 1H), 7.98(s, 1H)
3-7	1.35(t, 3H, $J = 4.4 \text{ Hz}$ ), 2.33(s, 3H), 3.49(s, 3H), 3.77(s, 3H), 3.83(s, 3H), 4.44(q, 2H, $J = 4.4 \text{ Hz}$ ), 5.38(d, 1H, $J = 10.0 \text{ Hz}$ ), 6.23(d, 1H, $J = 10.0 \text{ Hz}$ ), 6.48(s, 1H), 8.17(s, 1H)
3-8	2.34(s, 3H), 3.51(s, 3H), 3.77(s, 3H), 3.82(s, 3H), 3.95(s, 3H), 5.31(d, 1H, $J = 10.4 \text{ Hz}$ ), 6.23(d, 1H, $J = 10.4 \text{ Hz}$ ), 6.47(s, 1H), 8.36(s, 1H)
3-12	2.24(s, 3H), 3.53(s, 3H), 3.77(s, 3H), 3.83(s, 3H), 3.97(s, 3H), 4.50-4.65(br, 1H), 6.28-6.34(br, 1H), 6.48(s, 1H), 8.16(s, 1H)

【0032】

【表 11】

第4表つづき

化合物 No.	$^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3, 400 \text{ MHz}) : \delta (\text{ppm})$
3-14	2.35(s, 3H), 3.29(s, 3H), 3.74(s, 3H), 3.82(s, 3H), 3.90(s, 3H), 4.86-4.88(br, 1H), 6.19-6.22(br, 1H), 6.51(s, 1H), 8.31(s, 1H)
3-15	2.32(s, 3H), 3.52(s, 3H), 3.77(s, 3H), 3.82(s, 3H), 4.11(s, 3H), 5.32(d, 1H, $J = 10.0 \text{ Hz}$ ), 6.21(d, 1H, $J = 10.0 \text{ Hz}$ ), 6.55(s, 1H), 8.07(s, 1H)
3-16	2.10(s, 3H), 2.26(s, 3H), 3.59(s, 3H), 3.73(s, 3H), 3.77(s, 3H), 5.15(d, 1H, $J = 9.2 \text{ Hz}$ ), 6.41(d, 1H, $J = 9.2 \text{ Hz}$ ), 6.42(s, 1H), 8.08(s, 1H)
3-17	2.18(s, 3H), 3.62(s, 3H), 3.76(s, 3H), 3.81(s, 3H), 5.02(brs, 1H), 6.41(brs, 1H), 6.46(s, 1H), 8.57(s, 1H)
3-18	2.21(s, 3H), 2.42(s, 3H), 3.72(s, 3H), 3.79(s, 3H), 3.81(s, 3H), 4.97(d, 1H, $J = 10.0 \text{ Hz}$ ), 6.07(d, 1H, $J = 10.0 \text{ Hz}$ ), 6.46(s, 1H), 7.86(s, 1H)
3-23	2.17(s, 3H), 2.33(s, 3H), 3.54(s, 3H), 3.79(s, 3H), 3.84(s, 3H), 3.97(s, 3H), 5.32(d, 1H, $J = 10.0 \text{ Hz}$ ), 6.23(d, 1H, $J = 10.0 \text{ Hz}$ ), 6.49(s, 1H), 8.21(s, 1H)
3-30	2.32(s, 3H), 3.37(s, 3H), 3.75(s, 3H), 3.79(s, 3H), 3.81(s, 3H), 4.28(d, 1H, $J = 6.0 \text{ Hz}$ ), 5.59(dd, 1H, $J = 10.4 \text{ Hz}$ , $46.8 \text{ Hz}$ ), 5.97(dd, 1H, $J = 10.4 \text{ Hz}$ , $46.8 \text{ Hz}$ ), 6.27(d, 1H, $J = 6.0 \text{ Hz}$ ), 6.47(s, 1H), 8.08(s, 1H)

【0033】

次に本発明に係わる製剤例を記載するが、本発明における成分量、剤型等は記載例のみに限定されるものではない。

## 【0034】

## 製剤例 1

- |                  |        |
|------------------|--------|
| (1) 本発明化合物       | 20 重量部 |
| (2) クレー          | 72 重量部 |
| (3) リグニンスルホン酸ソーダ | 8 重量部  |

以上のものを均一に混合して水和剤とする。

## 【0035】

## 製剤例 2

- |            |        |
|------------|--------|
| (1) 本発明化合物 | 5 重量部  |
| (2) タルク    | 95 重量部 |

以上のものを均一に混合して粉剤とする。

## 【0036】

## 製剤例 3

- |                           |        |
|---------------------------|--------|
| (1) 本発明化合物                | 20 重量部 |
| (2) N, N' - ジメチルアセトアミド    | 20 重量部 |
| (3) ポリオキシエチレンアルキルフェニルエーテル | 10 重量部 |
| (4) キシレン                  | 50 重量部 |

以上のものを均一に混合、溶解して乳剤とする。

## 【0037】

## 製剤例 4

- |                             |        |
|-----------------------------|--------|
| (1) クレー                     | 68 重量部 |
| (2) リグニンスルホン酸ソーダ            | 2 重量部  |
| (3) ポリオキシエチレンアルキルアリアルサルフェート | 5 重量部  |
| (4) 微粉シリカ                   | 25 重量部 |

以上の各成分の混合物と、本発明化合物とを 4 : 1 の重量割合で混合し、水和剤とする。

## 【0038】

## 製剤例 5

- |            |        |
|------------|--------|
| (1) 本発明化合物 | 50 重量部 |
|------------|--------|

- (2) オキシレーテッドポリアルキルフェニルフォスフェートトリエタノールアミン 2 重量部  
(3) シリコーン 0.2 重量部  
(4) 水 47.8 重量部

以上のものを均一に混合、粉碎した原液に更に

- (5) ポリカルボン酸ナトリウム 5 重量部  
(6) 無水硫酸ナトリウム 42.8 重量部

を加え均一に混合、造粒、乾燥して顆粒水和剤とする。

#### 【0039】

##### 製剤例 6

- (1) 本発明化合物 5 重量部  
(2) ポリオキシエチレンオクチルフェニルエーテル 1 重量部  
(3) ポリオキシエチレンの燐酸エステル 0.1 重量部  
(4) 粒状炭酸カルシウム 93.9 重量部

(1) ~ (3) を予め均一に混合し、適量のアセトンで希釈した後、(4) に吹付け、アセトンを除去して粒剤とする。

#### 【0040】

##### 製剤例 7

- (1) 本発明化合物 2.5 重量部  
(2) N-メチル-2-ピロリドン 2.5 重量部  
(3) 大豆油 95.0 重量部

以上のものを均一に混合、溶解して微量散布剤 (ultra low volume formulation) とする。

#### 【0041】

##### 製剤例 8

- (1) 本発明化合物 20 重量部  
(2) オキシレーテッドポリアルキルフェノール  
フォスフェートトリエタノールアミン 2 重量部  
(3) シリコーン 0.2 重量部  
(4) ザンサンガム 0.1 重量部

(5) エチレングリコール

5 重量部

(6) 水

72.7 重量部

以上のものを均一に混合、粉碎して水性懸濁剤とする。

【0042】

以下に、農園芸用殺菌剤の試験例を記載する。

【0043】

試験例 1 コムギうどんこ病予防効果試験

直径7.5 cmのポリ鉢でコムギ（品種：農林61号）を栽培し、1.5葉期に達した時に本発明化合物を所定濃度に調整した薬液10 mLをスプレーガンにて散布した。薬液が乾燥した後、うどんこ病菌の分生胞子を振り掛け接種し、20℃の恒温室内に保った。接種6から8日後に孢子形成面積を調査した。その結果、前記化合物中、化合物No. 1-1、1-2、1-4、1-5、1-6、1-7、1-8、1-10、1-11、1-12、1-13、1-14、1-15、1-16、1-17、1-18、1-19、1-20、1-21、1-22、1-23、1-24、1-35、1-36、1-37、2-1、2-2、2-3、2-4、2-5、2-6が125 ppmで薬剤無処理と比較し90%以上の防除効果を示した。

【0044】

試験例 2 イネいもち病予防効果試験

直径7.5 cmのポリ鉢で稲（品種：日本晴）を栽培し、1.5葉期に達した時に本発明化合物を所定濃度に調整した薬液10 mLをスプレーガンにて散布した。薬液が乾燥した後、いもち病菌の分生孢子懸濁液を噴霧接種し、24時間20℃の接種箱に保ち、その後20℃の恒温室内に保った。接種6から11日後に病斑数を調査した。その結果、前記化合物中、化合物No. 1-1、1-2、1-15、1-16、1-17、1-22、1-23、1-24、1-35、2-3が500 ppmで薬剤無処理と比較し90%以上の防除効果を示した。

【0045】

試験例 3 キュウリうどんこ病予防効果試験

直径7.5 cmのポリ鉢でキュウリ（品種：四葉）を栽培し、1.5葉期に達した時に本発明化合物を所定濃度に調整した薬液10 mLをスプレーガンにて散布した。

。薬液が乾燥した後、うどんこ病菌の分生孢子懸濁液を噴霧接種し、20℃の恒温室内に保った。接種6～11日後に孢子形成面積を調査した。その結果、前記化合物中、化合物No. 1-1、1-2、1-4、1-5、1-7、1-8、1-10、1-11、1-12、1-13、1-14、1-15、1-16、1-21、1-22、1-23、1-24、1-35、1-36、1-37、2-1、2-2、2-3、2-6が125 ppmで薬剤無処理と比較し90%以上の防除効果を示した。

#### 【0046】

上記の試験で、優れた予防効果を示す化合物について、上記試験方法に加えて、降雨による効果の変動を考慮した下記条件の試験方法により効果を確認した。以下に、本発明に係わる農園芸用殺菌剤の耐雨性試験例を記載する。

#### 【0047】

##### 試験例4 キュウリうどんこ病耐雨性試験

上記の試験で効果を示した化合物について、より実使用に近い状況を想定し、降雨による効果の変動を調査した。

直径7.5 cmのポリ鉢でキュウリ（品種：四葉）を栽培し、1.5葉期に達した時に本発明化合物を所定濃度に調整した薬液をスプレーガンにて散布した（1000 L/ha相当）。処理翌日に10 mm/hの人工降雨を1時間処理し、無降雨処理（予防）の苗とともにうどんこ病分生孢子懸濁液を噴霧接種し、20℃の恒温室内に保った。接種6から11日後に病斑数を調査し、薬剤無処理と比較し防除率を算出した。結果を第5表に示す。

【表 12】

第5表 キュウリうどんこ病防除率 (%)

化合物No.	500 gai/ha	
	予防	降雨
1-1	100	100
1-12	100	68
1-14	100	100
1-15	100	100
1-23	100	100
1-24	100	85
1-35	100	100
1-37	100	100
2-1	100	0
2-2	100	35
2-3	100	0
2-4	92.5	35
2-5	95	0
2-6	90	0

【0048】

## 【発明の効果】

以上のように、本発明の特定の3-ベンゾイル-2,4,5-置換ピリジン誘導体またはその塩は、殺菌剤の有効成分として優れた効果を示し、かつ散布後に作物が降雨を被った場合においても優れた効果を発揮できる。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 本発明は、新規なベンゾイルピリジン誘導体またはその塩を含有する殺菌剤に関する。

【解決手段】 薬剤散布後に作物が降雨を被った場合において優れた効果を発揮できる、いわゆる耐雨性を有する特定の3-ベンゾイル-2,4,5-置換ピリジン誘導体またはその塩からなる化合物群またはそれらを含有する殺菌剤を提供することにより、薬剤散布後の降雨を考慮して薬剤の使用回数或いは使用量等を増やす必要がなく、より安いコスト、より少ない手間で作物を病害から守ることができる。

【選択図】 なし

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2002-317759
受付番号	50201650368
書類名	特許願
担当官	第五担当上席 0094
作成日	平成14年11月 1日

<認定情報・付加情報>

【提出日】 平成14年10月31日

次頁無

特願 2002-317759

出願人履歴情報

識別番号

[000000354]

1. 変更年月日

1993年 6月21日

[変更理由]

住所変更

住 所

大阪府大阪市西区江戸堀一丁目3番15号

氏 名

石原産業株式会社

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

☒ BLACK BORDERS

☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES

☐ FADED TEXT OR DRAWING

☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING

☐ SKEWED/SLANTED IMAGES

☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS

☐ GRAY SCALE DOCUMENTS

☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT

☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY

☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**